

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202
ETATS-UNIS D'AMERIQUE
in its capacity as elected Office

Date of mailing: 08 March 2001 (08.03.01)	
International application No.: PCT/JP00/05737	Applicant's or agent's file reference: F-1586
International filing date: 25 August 2000 (25.08.00)	Priority date: 27 August 1999 (27.08.99)
Applicant: SAWADA, Yuji et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:
18 December 2000 (18.12.00)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No.: (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer:</p> <p>J. Zahra</p> <p>Telephone No.: (41-22) 338.83.38</p>
--	--

THIS PAGE BLANK (USPTO)

国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)
[PCT18条、PCT規則43、44]

出願人又は代理人 の書類記号 F-1586	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JP00/05737	国際出願日 (日.月.年) 25.08.00	優先日 (日.月.年) 27.08.99
出願人(氏名又は名称) 三井化学株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 _____ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01M2/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl¹ H01M2/02, C23C22/00-30/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 11-86808, A(住友電気工業株式会社), 30. 3月. 1999(30. 03. 99) (ファミリーなし)	1-24
A	JP, 11-67166, A(昭和アルミニウム株式会社), 9. 3月. 1999(09. 03. 99) (ファミリーなし)	1-24
A	JP, 9-283101, A(住友電気工業株式会社), 31. 10. 1997(31. 10. 97) (ファミリーなし)	1-24

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高木 正博



4 X

9541

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

THIS PAGE BLANK (USPTO)



PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **11086808 A**(43) Date of publication of application: **30 . 03 . 99**

(51) Int. Cl.

H01M 2/02
B32B 27/32
H01M 6/16
// B32B 15/08

(21) Application number: **10004663**(22) Date of filing: **13 . 01 . 98**(30) Priority: **15 . 07 . 97 JP 09189344**(71) Applicant: **SUMITOMO ELECTRIC IND LTD**

(72) Inventor: **FUKUDA YUTAKA**
TANAKA KEIICHI
HANABUSA KOJI
HOSOKAWA TAKEHIRO

(54) SEALING BAG FOR NONAQUEOUS ELECTROLYTE BATTERY

(57) Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To prevent a metal layer from being corroded through an electrolyte by forming a sealing bag sealing a positive electrode, a negative electrode, and the electrolyte with a sheet constituted of the metallic layer and a plastic layer, and heat-laminating the plastic layer to the face on the electrolyte side of the metallic layer with acid denatured polyethylene to directly stick them together.

SOLUTION: A sealing bag for sealing a positive electrode, a negative electrode, and an electrolyte and extracting the lead wires of the positive electrode and

the negative electrode to the outside is formed with a material stuck together with plastic layers inserted with a metal layer, such as an aluminum foil and a metal deposition layer into a sandwich shape, a PET film is stuck to the outer face side of the metallic layer, and a thermoplastic resin such as polyethylene is stuck to the inner face side. A composition mainly made of acid denatured polyethylene, acid denatured polypropylene, or ionomer is used for a plastic layer stuck to the face on the electrolyte side of the metallic layer, and it is directly heat-laminated and stuck to the metallic layer for providing a moisture permeation preventing function and an acid permeation preventing function.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT Rec'd 20 FEB 2002

NOTIFICATION CONCERNING
SUBMISSION OR TRANSMITTAL
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:
YANAGIHARA, Shigeru
Nishishinbashi Chuo Building
Suite 503
15-8, Nishishinbashi 3-chome
Minato-ku, Tokyo 105-0003
JAPON

RECEIVED

DEC. - 4. 2000

YANAGIHARA
&
ASSOCIATES

Date of mailing (day/month/year) 07 November 2000 (07.11.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference F-1586	
International application No. PCT/JP00/05737	
International publication date (day/month/year) Not yet published	
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC. et al	International filing date (day/month/year) 25 August 2000 (25.08.00) Priority date (day/month/year) 27 August 1999 (27.08.99)

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
27 Augu 1999 (27.08.99)	11/242188	JP	13 Octo 2000 (13.10.00)

The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No. (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Tessadel PAMPLIEGA

Tdp

Telephone No. (41-22) 338.83.38

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT COOPERATION TREATY

PTO/PCT Rec'd 20 FEB 2002

From the INTERNATIONAL BUREAU

PCT

**NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES**

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

To:

YANAGIHARA, Shigeru
Nishishinbashi Chuo Building
Suite 503
15-8, Nishishinbashi 3-chome
Minato-ku, Tokyo 105-0003
JAPON

RECEIVED

MAR. 19. 2001

YANAGIHARA
&
ASSOCIATES

Date of mailing (day/month/year) 08 March 2001 (08.03.01)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference F-1586			
International application No. PCT/JP00/05737	International filing date (day/month/year) 25 August 2000 (25.08.00)	Priority date (day/month/year) 27 August 1999 (27.08.99)	
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC. et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:
CN,EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on
08 March 2001 (08.03.01) under No. WO 01/17043

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer J. Zahra Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

THIS PAGE BLANK (USPTO)

4T
Translation

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

Applicant's or agent's file reference F-1586	FOR FURTHER ACTION See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/05737	International filing date (day/month/year) 25 August 2000 (25.08.00)	Priority date (day/month/year) 27 August 1999 (27.08.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01M 2/02		
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>3</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of _____ sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	

Date of submission of the demand 18 December 2000 (18.12.00)	Date of completion of this report 19 February 2001 (19.02.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/05737

I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:*

- ☒ the international application as originally filed
- ☐ the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the claims:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, as amended (together with any statement under Article 19
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the drawings:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____
- ☐ the sequence listing part of the description:
 pages _____, as originally filed
 pages _____, filed with the demand
 pages _____, filed with the letter of _____

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language _____ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☐ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages _____
- ☐ the claims, Nos. _____
- ☐ the drawings, sheets/fig _____

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).**

* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

** Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement**1. Statement**

Novelty (N)	Claims	1-24	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	1-24	YES
	Claims		NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-24	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations

The inventions set forth in Claims 1-24 appear to involve an inventive step. None of the documents cited in the international search report describes improving resistance to polar organic solvents and salts by providing a surface treatment later formed on the surface of a metal layer between the metal layer and an adhesive resin layer comprising a polyolefin modified with carboxylic acid group or derivative thereof in a laminated film for electrolyte sealing, and this matter is not obvious to persons skilled in the art.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

REC'D 02 MAR 2001

WIPO

PCT

PCT

国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 F-1586	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知(様式PCT/ IPEA/416)を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/05737	国際出願日 (日.月.年) 25.08.00	優先日 (日.月.年) 27.08.99
国際特許分類(IPC) Int. Cl ⁷ H01M2/02		
出願人(氏名又は名称) 三井化学株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条(PCT36条)の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 3 ページからなる。
- ☐ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び/又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び/又は図面も添付されている。
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)
この附属書類は、全部で ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☐ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☐ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 18.12.00	国際予備審査報告を作成した日 19.02.01		
名称及びあて先 日本国特許庁(IPEA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官(権限のある職員) 高木 正博	4X	9541
電話番号 03-3581-1101 内線 3477			

THIS PAGE BLANK (USPTO)

I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に
 応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。
 PCT規則70.16, 70.17)

☒ 出願時の国際出願書類

- ☐ 明細書 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 請求の範囲 第 _____ 項、 出願時に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 請求の範囲 第 _____ 項、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 図面 第 _____ ページ/図、 出願時に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 図面 第 _____ ページ/図、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの
- ☐ 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 出願時に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの
 明細書の配列表の部分 第 _____ ページ、 _____ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である _____ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記の書類が削除された。

- ☐ 明細書 第 _____ ページ
☐ 請求の範囲 第 _____ 項
☐ 図面 図面の第 _____ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条(PCT35条(2))に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性(N)

請求の範囲 1-24

有

請求の範囲

無

進歩性(IS)

請求の範囲 1-24

有

請求の範囲

無

産業上の利用可能性(IA)

請求の範囲 1-24

有

請求の範囲

無

2. 文献及び説明(PCT規則70.7)

請求の範囲1-24に記載された発明は進歩性を有する。電池電解液封止フィルム用積層体において、金属層とカルボン酸基又はその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層との間に金属層の表面に形成された表面処理層を設けることにより、極性有機溶媒又は塩に対する耐久力が向上することは、国際調査報告で引用されたいずれの文献にも記載されておらず、当業者にとって自明の事項でもない。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年3月8日 (08.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/17043 A1

- (51) 国際特許分類⁷: H01M 2/02 (SAWADA, Yuji) [JP/JP]; 〒299-0108 千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学株式会社内 Chiba (JP). 中嶋靖 (NAKASHIMA, Yasushi) [JP/JP]; 〒100-6070 東京都千代田区霞ヶ関三丁目2番5号 三井化学株式会社内 Tokyo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/05737
- (22) 国際出願日: 2000年8月25日 (25.08.2000)
- (25) 国際出願の言語: 日本語 (74) 代理人: 柳原 成 (YANAGIHARA, Shigeru); 〒105-0003 東京都港区西新橋三丁目15番8号 西新橋中央ビル503号 Tokyo (JP).
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ: 特願平11/242188 1999年8月27日 (27.08.1999) JP (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三井化学株式会社 (MITSUI CHEMICALS, INC.) [JP/JP]; 〒100-6070 東京都千代田区霞ヶ関三丁目2番5号 Tokyo (JP). (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (DE, FR, GB).
- (72) 発明者; および 添付公開書類:
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 沢田有史 — 国際調査報告書
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: LAMINATE, METHOD FOR PREPARATION THEREOF, AND USE THEREOF

(54) 発明の名称: 積層体、その製造方法、およびその用途

(57) Abstract: A laminate for an electrolyte sealing film or an electrolyte protecting film for a secondary cell, which comprises a metal layer, a surface treatment layer formed on the metal layer, a primer layer formed on the surface treatment layer and, laminated on the primer layer, an adhesive resin layer comprising a polyolefin modified with a carboxylic acid group or a derivative thereof. The laminate is excellent with respect to the adhesion between the metal layer and the adhesive resin layer and also excellent in the durable resistance to a polar organic solvent or a salt, and thus does not suffer delamination from the contact with a non-aqueous electrolyte and the like. Accordingly, the laminate can be suitably used especially as an electrolyte sealing film for a secondary cell.

(57) 要約:

金属層と、金属層の表面に形成された表面処理層と、表面処理層上に形成されたプライマー層と、プライマー層上に積層されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む二次電池電解液封止フィルム用または二次電池電極保護フィルム用積層体は、金属層と接着樹脂層との接着性に優れるとともに極性有機溶媒または塩に対する耐久力に優れ、非水電解質等と接触しても層間剥離を生じることがないので、特に二次電池の電解液封止フィルムとして好適に使用することができる。

WO 01/17043 A1

THIS PAGE BLANK (USPTO)

明細書

積層体、その製造方法、およびその用途

5 技術分野

本発明は金属と接着性樹脂を積層した電池電解液封止フィルム用または電池電極部保護フィルム用の積層体、特に二次電池電解液封止フィルム用または二次電池電極部保護フィルム用の積層体、その製造方法および用途に関するものである。

1 0 背景技術

非水電解質電池を構成する正極、負極、電解液等を封入し、正極と負極のリード線を夫々外部に取り出し、これらのリード線をも封入するための封入袋として、アルミニウム箔等の金属箔や金属蒸着層がサンドイッチ状に挿入されたプラスチックとの貼り合わせ材料が用いられている。このような封入袋は少なくとも内側の電解液と接するプラスチックは電解質に溶解しないことが必要であり、封入袋の最内層にマレイン酸変性ポリオレフィン樹脂を使用し、ヒートシール部をこのマレイン酸変性ポリオレフィン樹脂で構成することにより、密封信頼性を顕著に向上させた封入袋が提案されている（特開平 9-283101 号）。

2 0 マレイン酸変性ポリオレフィン樹脂は金属との接着性に優れるとともにヒートシール性に優れるため、一般的には接着性樹脂として使用されている。しかし上記のような電池の封止フィルムとして使用すると、マレイン酸変性ポリオレフィンは金属との積層直後には優れた接着力を示すが電解液と接触した状態を続けると層間剥離を生じ、封止フィルムとして使用することができない。

2 5 電池の非水電解質は極性有機溶媒に塩が溶解したものである。これらの極性有機溶媒および塩はマレイン酸により極性を付与されたマレイン酸変性ポリオレフィン樹脂との親和性を有するため、これらがマレイン酸変性ポリオレフィン層を

- 浸透して金属層に至り金属と反応することにより層間剥離が生じるものと推測されるが、従来の積層体はこのような層間剥離を防止できないという問題点がある。また金属である正極部、負極部も接触によるショートの可能性があるので、保護フィルムを貼りつける必要があるが、封止フィルムと同様の理由で保護フィルムが剥離現象を生じる問題がある。

- 5 本発明の目的は、上記の問題点を解決するため、金属層と接着性樹脂層の接着性に優れるとともに極性有機溶媒または塩に対する耐久性に優れ、非水電解質等と接触しても層間剥離を生じることがない電池電解液封止フィルム用または電池電極部保護フィルム用積層体、特に二次電池電解液封止フィルム用または二次電池電極部保護フィルム用積層体、ならびにその効率的な製造方法および用途を提案することである。

発明の開示

- 1 5 本発明は次の電池電解液封止フィルム用または電池電極部保護フィルム用積層体、その製造方法および用途である。

(1) 金属層と、

金属層の表面に形成された表面処理層と、

表面処理層上に形成されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、

- 2 0 電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体（以下、単に積層体という場合がある）。

(2) 金属層と、

金属層の表面に形成された表面処理層と、

表面処理層上に形成されたプライマー層と、

- 2 5 プライマー層上に積層されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、

電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体（以下、単に積層体という場合がある）。

- （３） 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
5 表面処理層上に形成されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、

二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体（以下、単に積層体という場合がある）。

- （４） 金属層と、
1 0 金属層の表面に形成された表面処理層と、
表面処理層上に形成されたプライマー層と、
プライマー層上に積層されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、

- 二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体（以下、単に積層体という場合がある）。

（５） 金属層がアルミニウム、ニッケル、銅、鉄およびこれらの合金から選ばれる１種以上のものである上記（１）ないし（４）の積層体。

（６） 表面処理層が化成処理層である上記（１）ないし（５）のいずれかの積層体。

- 2 0 （７） プライマー層がエポキシ系、ウレタン系、エポキシウレタン系、イミン系、チタネート系、ポリエステル系またはシラン系の熱硬化型プライマーである上記（１）ないし（６）のいずれかの積層体。

（８） 接着性樹脂がポリオレフィン樹脂にエチレン性不飽和カルボン酸がグラフト共重合したグラフト変性ポリオレフィン樹脂である上記（１）ないし

- 2 5 （７）のいずれかの積層体。

（９） グラフト変性ポリオレフィン樹脂がグラフト変性ポリエチレン樹脂ま

たはグラフト変性ポリプロピレン樹脂である上記（８）の積層体。

（１０） 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

（１１） 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にプライマー層を形成し、プライマー層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

（１２） 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

（１３） 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にプライマー層を形成し、プライマー層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

（１４） 上記（１）、（２）および（５）ないし（９）のいずれかの積層体からなる電池電解液封止フィルムまたは電池電極部保護フィルム。

（１５） 上記（１）、（２）および（５）ないし（９）のいずれかの積層体からなる電池電解液封止フィルムまたは電池電極部保護フィルムを含んでなる電池。

（１６） 上記（３）ないし（９）のいずれかの積層体からなる二次電池電解液封止フィルムまたは二次電池電極部保護フィルム。

(17) 上記(3)ないし(9)のいずれかの積層体からなる二次電池電解液封止フィルムまたは二次電池電極部保護フィルムを含んでなる二次電池。

- (18) 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
5 表面処理層上に形成されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層と
を含む積層体からなるフレキシブルパッケージ。

- (19) 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
10 表面処理層上に形成されたプライマー層と、
プライマー層上に積層されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層と
を含む積層体からなるフレキシブルパッケージ。

- (20) 金属層がアルミニウム、ニッケル、銅、鉄およびこれらの合金から
15 選ばれる1種以上のものである上記(18)または(19)のフレキシブルパッケージ。

(21) 表面処理層が化成処理層である上記(18)ないし(20)のいずれかのフレキシブルパッケージ。

- (22) プライマー層がエポキシ系、ウレタン系、エポキシウレタン系、イ
20 ミン系、チタネート系、ポリエステル系またはシラン系の熱硬化型プライマーである上記(18)ないし(21)のいずれかのフレキシブルパッケージ。

(23) 接着性樹脂がポリオレフィン樹脂にエチレン性不飽和カルボン酸がグラフト共重合したグラフト変性ポリオレフィン樹脂である上記(18)ないし(22)のいずれかのフレキシブルパッケージ。

- (24) グラフト変性ポリオレフィン樹脂がグラフト変性ポリエチレン樹脂
25 またはグラフト変性ポリプロピレン樹脂である上記(23)のフレキシブルパッ

ケージ。

本発明において金属層としては、アルミニウム、ニッケル、銅、鉄、その他の単体金属、あるいはこれらの合金など、従来より接着性樹脂との積層体に用いられていた金属の箔、シート、板等の材料が使用できる。

- 5 金属層の表面に形成する表面処理層は、金属表面に不活性保護被膜を形成するための表面処理により形成される被膜層であり、クロム酸、リン酸等の酸による化成処理層、あるいは陽極酸化法による酸化膜層などがあげられる。これらの中では作業の簡便性、性能コストの点からクロム酸、リン酸等による化成処理が好ましい。

- 1 0 クロム酸、リン酸等による化成処理は、0.05～5重量%の3価クロムを含むクロム酸（塩）および／またはpH2～4のリン酸（塩）を含む化成処理液にアルミニウム等の金属を浸漬し、23～80℃で1秒～5分間処理することにより、クロム酸を含む化成処理膜を形成する。この中ではクロム酸（塩）およびリン酸（塩）を含む化成処理液で処理するのが好ましい。

- 1 5 陽極酸化の場合は、電解液（硫酸5～25重量%、硫酸アルミニウム1～5g／l）を15～25℃に保ち、アルミニウム等の金属を浸漬して直流15～20Vで1～5分間処理することにより、不動態被膜を形成する。

上記の表面処理層の上に形成するプライマー層は、通常、金属表面の塗装の下地塗装に使用されるプライマーが使用される。このようなプライマーとしてはエポキシ系、ウレタン系、エポキシウレタン系、イミン系、チタネート系、ポリエステル系、シラン系等の熱硬化型プライマーが使用できる。これらの中ではエポキシ系プライマーが、金属層とカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層との接着性および耐久性がウレタン系その他のプライマーよりも優れるため好ましい。

- 2 5 これらのプライマーは市販品が使用できる。市販品のエポキシ系プライマーとして、日本ペイント（株）製デュフロンK300、オルガブラサフ30NC、油

化シェル（株）製エポメートB002、エピコート828、川上塗料（株）製エ
トン2100E、ウレタン系プライマーとして日本ポリウレタン工業（株）製、
コロネートL、ニッポラン1100、タケダ薬品（株）製A-310、A-3、
イミン系プライマーとして日本触媒化学工業（株）製P-1000（いずれも商
5 標）があげられるが、これらに限定されない。

これらのプライマーによるプライマー層の形成はそれぞれのプライマーを構成
する主剤と硬化剤を適当な溶媒に溶解して金属層の表面処理層上に塗布し、それ
ぞれの硬化剤の硬化温度に加熱し、必要により加圧して硬化させプライマー層を
形成する。

- 1 0 本発明において接着性樹脂として使用するカルボン酸基またはその誘導体で変
性されたポリオレフィン、好ましくは少なくとも1つの重合可能なエチレン性
不飽和カルボン酸またはその誘導体を、変性前のポリオレフィン樹脂にグラフト
反応により共重合したグラフト変性ポリオレフィン（以下、単にポリオレフィン
という場合がある）である。変性前のポリオレフィン樹脂としてはポリプロピレ
1 5 ン、ポリエチレンなどのポリオレフィン樹脂があげられる。この中では特にポリ
プロピレンが耐熱性の点から好ましい。

- 上記ポリプロピレンとしては、プロピレンの単独重合体、プロピレンと通常2
0モル%以下の炭素数2以上のプロピレン以外の α -オレフィンとの共重合体、
プロピレンとエチレン性不飽和カルボン酸またはその誘導体との共重合体などが
2 0 あげられる。上記ポリエチレンとしては、エチレンの単独重合体、エチレンと通
常20モル%以下の炭素数3以上の α -オレフィンとの共重合体、エチレンとエ
チレン性不飽和カルボン酸またはその誘導体との共重合体などがあげられる。共
重合体の場合、ランダム共重合体であっても、ブロック共重合体であってもよい。
プロピレンまたはエチレンと共重合する上記エチレン性不飽和カルボン酸または
2 5 その誘導体としては、後述するエチレン性不飽和カルボン酸またはその誘導体と
同じものが使用できる。変性前のポリオレフィン樹脂としては、プロピレンの単

独重合体、プロピレンと α -オレフィンとの共重合体、エチレンの単独重合体、およびエチレンと α -オレフィンとの共重合体が好ましい。これらは1種単独で使用することもできるし、2種以上を組み合わせて使用することもできる。

変性ポリオレフィン樹脂において、エチレン性不飽和カルボン酸またはその誘導体の変性ポリオレフィン樹脂全体に占めるグラフト量（グラフト率）は0.001～1重量%、好ましくは0.01～0.6重量%であるのが望ましい。

変性前のポリオレフィン樹脂にグラフト重合する重合可能なエチレン性不飽和カルボン酸またはその誘導体としては、例えばアクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、イタコン酸、シトラコン酸、メサコン酸、無水マレイン酸、4-メチルシクロヘキセ-4-エン-1,2-ジカルボン酸無水物、ビスクロ[2.2.2]オクト-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物、1,2,3,4,5,8,9,10-オクタヒドロナフタレン-2,3-ジカルボン酸無水物、2-オクタ-1,3-ジケトスピロ[4.4]ノン-7-エン、ビスクロ[2.2.1]ヘプト-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物、マレオピマル酸、テトラヒドロフタル酸無水物、x-メチル-ビスクロ[2.2.1]ヘプト-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物、x-メチル-ノルボルネン-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物、ノルボルネン-5-エン-2,3-ジカルボン酸無水物などをあげることができる。好ましくは無水マレイン酸が使用される。これらは単独、あるいは2種以上混合して使用することができる。

エチレン性不飽和カルボン酸またはその誘導体から選ばれるグラフトモノマーを変性前のポリオレフィン樹脂にグラフトさせるには、従来公知の種々の方法を採用することができる。例えば、ポリオレフィン樹脂を溶融し、そこにグラフトモノマーを添加してグラフト反応させる方法、またはポリオレフィン樹脂を溶媒に溶解して溶液とし、そこにグラフトモノマーを添加してグラフト反応させる方法などがあげられる。いずれの場合にも前記グラフトモノマーを効率よくグラフト共重合させるためには、ラジカル開始剤の存在下にグラフト反応を実施するこ

とが好ましい。グラフト反応は、通常60～350℃の条件で行われる。ラジカル開始剤の使用割合は変性前のポリオレフィン樹脂100重量部に対して、通常0.001～1重量部の範囲である。

ラジカル開始剤としては、有機ペルオキシドが好ましく、例えばベンゾイルペルオキシド、ジクロルベンゾイルペルオキシド、ジクミルペルオキシド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(ペルオキシドベンゾエート)ヘキシ-3,1,4-ビス(tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン、ラウロイルペルオキシド、tert-ブチルペルアセテート、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキシ-3,2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサン、tert-ブチルペルベンゾエート、tert-ブチルペルフェニルアセテート、tert-ブチルペルイソブチレート、tert-ブチルペルsec-オクトエート、tert-ブチルペルピバレート、クミルペルピバレートおよびtert-ブチルペルジエチルアセテートなどがあげられる。その他アゾ化合物、例えばアゾビスイソブチロニトリル、ジメチルアゾイソブチレートなどを用いることもできる。

これらのラジカル開始剤は、グラフト反応のプロセスにより最適なものが選定されるべきであるが、通常ジクミルペルオキシド、ジ-tert-ブチルペルオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキシ-3,2,5-ジメチル-2,5-ジ(tert-ブチルペルオキシ)ヘキサン、1,4-ビス(tert-ブチルペルオキシイソプロピル)ベンゼン等のジアルキルペルオキシドが好ましく用いられる。

上記のカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂は、フィルムまたはシート状に成形して接着性樹脂層が形成される。成形方法は押出成形、インフレーション成形など公知の成形方法が採用できる。

本発明の積層体は、前記の金属層の表面に表面処理を施して表面処理層を形成

- し、表面処理層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層するか、あるいは表面処理層上にプライマーを塗布してプライマー層を形成し、さらにプライマー層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層を積層して製造することができる。
- 5 プライマー層を形成する際、加熱硬化させた後、接着性樹脂層を積層して加熱により融着するのが好ましいが、プライマーの塗布後硬化前に接着性樹脂層を積層し、融着の際の熱を利用して硬化を行ってもよい。

上記により製造される本発明の積層体は、金属層／表面処理層／接着性樹脂層または金属層／表面処理層／プライマー層／接着性樹脂層の構成となっている。

- 1 0 プライマー層が存在する場合、このプライマー層の存在により金属層（表面処理層）と接着性樹脂層との接着性が高くなる。そして表面処理層の存在により、接着性樹脂層側に非水電解液が接する場合に、金属層とプライマー層の界面が非水電解液により剥離するのが防止される。

- 1 5 本発明の積層体は金属層の反対側に、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン樹脂、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステルなどの1種又は数種の基材樹脂からなる1層または複層の基材樹脂層を積層することができる。この場合の層構成は、基材樹脂層／金属層／表面処理層／接着性樹脂層または基材樹脂層／金属層／表面処理層／プライマー層／接着性樹脂層となる。

- 2 0 本発明の積層体は、一次または二次電池の電解液封止フィルムまたは電極部保護フィルムとして使用されるが、この場合接着性樹脂層側に極性有機溶媒および／または塩類等と接触させて使用される。特に極性有機溶媒および塩を含む非水電解質と接触させる状態で使用することにより、特に非水電解質電池、固体電池等の二次電池電解液封止フィルムまたは二次電池電極部保護フィルムとして好適に使用することができる。この場合、接着性樹脂層側が対向するように折り重ね
- 2 5 てヒートシールすることにより、電池用封止袋として使用することができる。本発明で用いている接着性樹脂層はヒートシール性に優れるため、非水電解質の漏

洩を防止し、電池として長期使用が可能になる。

上記の極性有機溶媒としては非プロトン性の極性溶媒例えばアルキルカーボネート、エステル、ケトンなどがあげられる。具体的には、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ブチレンカーボネート、ジメチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、γ-ブチロラクトン、1, 2-ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、2-メチルテトラヒドロフラン、1, 3-ジオキソラン、4-メチル-1, 3-ジオキソラン、メチルフォーマート、4-メチル-1, 3-ジオキソメチルフォーマート、メチルアセテート、メチルプロピオネートなどがあげられる。

10 塩としては、リチウム塩、ナトリウム塩、カリウム塩等のアルカリ金属塩があげられる。電池用としては LiPF_6 、 LiBF_4 、 Li -イミド等のリチウム塩が多く使用される。

15 非水電解質は環状炭酸エステル、鎖状炭酸エステル、それらの混合物等の非プロトン性極性有機溶媒に上記のアルカリ金属塩が0.5～3 mmol溶解したものである。

本発明の積層体、電池電解液封止フィルム、電池電極部保護フィルム、二次電池電解液封止フィルムおよび二次電池電極部保護フィルムは上記の極性溶媒および/または塩類、特にそれらの混合物である非水電解質と接触する状態で使用しても金属層、表面処理層、プライマー層、接着性樹脂層の層間剥離を生じることなく、長期にわたって使用することができる。

本発明の電池は前記積層体からなる電池電解液封止フィルムまたは電池電極部保護フィルムを有する電池である。本発明の電池は、上記フィルムが層間剥離を生じず、しかも非水電解質の漏洩を防止することができるので、電池として長期間安定して使用することができる。

25 本発明の二次電池は前記積層体からなる二次電池電解液封止フィルムまたは二次電池電極部保護フィルムを有する二次電池である。本発明の二次電池は、上記

フィルムが層間剥離を生じず、しかも非水電解質の漏洩を防止することができるので、電池として長期間安定して使用することができる。

本発明のフレキシブルパッケージは前記積層体からなる柔軟な包装材である。本発明のフレキシブルパッケージは、前記のように接着性樹脂層側が対向するように折り重ねてヒートシールすることにより、電池用封止袋などとして使用することができる。またその他にも、コンデンサ等の電気、電子部品の封止袋として使用することができる。

以上の通り、本発明の積層体は、金属層に表面処理層を形成し、その表面にプライマー層を介して接着性樹脂層を積層しているので、金属層と接着性樹脂層との接着力に優れるとともに極性有機溶媒または塩に対する耐久力に優れ、非水電解質等と接触しても層間剥離を生じることがない。このため、このような積層体を電池電解液封止フィルムまたは電池電極部保護フィルムとして用いた電池、および二次電池電解液封止フィルムまたは二次電池電極部保護フィルムとして用いた二次電池は長期間安定して使用することができる。

1 5

発明を実施するための最良の形態

以下、本発明の実施例について説明する。各例中、%は重量%を示す。

実施例 1

(試験片の作成)

2 0 アルミニウム板 (J I S - H 4 1 9、1 4 0 × 6 0 × 0. 2 mm) を、表面処理剤として純水中にリン酸-クロム酸化処理液 (3 価クロム濃度で 0. 2 4 % になるように調整した液体) 中に浸漬した後に水洗し、1 0 0 °C のエアオーブン中で 2 0 分間乾燥し、アルミニウム板処理サンプル A を作成した。

2 5 アルミニウム板処理サンプル A に接着性樹脂として無水マレイン酸変性ポリブロピレン樹脂 (M F R = 3 g / 1 0 分、無水マレイン酸グラフト量: 0. 1 5 %、フィルム厚さ 5 0 μ m) を重ねてプレス接着 (予熱 1 8 0 °C × 3 分、加圧 1 8 0

℃×1分、0.59MPa (6kg/cm²) 圧、冷却15℃×3分、0.49MPa (5kg/cm²) 圧) を行った。このときの対アルミニウム接着力を評価したところ、接着力は8.0N/15mmであった。

- 剥離条件：15mm幅、180度ピール、50mm/min (15mm幅の積層体を180度の方向に15mm/minの剥離速度で剥離・・・以下同じ)
(耐久浸漬試験)

- 1 liter容量の円筒のステンレス鋼缶中に、エチレンカーボネートを30%、メチルエチルカーボネートを55%、LiPF₆を15%に調整した電解液を注ぎ、その後上記の試験片を浸漬した。その後フタをし、液が漏れないように完全にシールし、80℃恒温槽で加温状態で10日間放置した。その後、室温までステンレス鋼缶が冷却した後に開封し、サンプルを取り出し電解液を十分洗い落とした。このときの対アルミニウム接着力を評価したところ、接着力は4.5N/15mmであった。

剥離条件：180度ピール、50mm/min

15 実施例2

- 実施例1において表面処理を行った後、エポキシ系プライマーとして日本ペイント製：デュフロンK300 (商標) を塗布し、前処理として170℃×15分間オープン内で加熱を加えたアルミニウム板処理サンプルBを作成し、実施例1と同様にして接着力を評価したところ、浸漬前後とも剥離不能 (接着性樹脂が母材破棄) であった。

20 実施例3

エポキシ系プライマーとして日本ペイント製：オルガブラサフ 30NC (商標) を使用した以外は実施例2と同様に試験を実施した。結果を表1に示す。

実施例4

- 25 エポキシ系プライマーとして油化シェル製：エポメートB002/エピコート828 (商標) を使用し、前処理として180℃×10分で加熱した以外は実施

例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 1 に示す。

実施例 5

エポキシ系プライマーとして川上塗料製：エトン 2100E（商標）を使用し、前処理として 120℃×20 分で加熱した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 1 に示す。

実施例 6

接着性樹脂フィルムとして無水マレイン酸変性ポリプロピレン（MFR = 7 g / 10 分、無水マレイン酸グラフト量：0.15%）を使用した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 1 に示す。

10 実施例 7

接着性樹脂フィルムとして無水マレイン酸変性ポリエチレン（MFR = 1.0 g / 10 分、無水マレイン酸グラフト量：0.11%）を使用した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 1 に示す。

実施例 8

15 接着性樹脂フィルムとして無水マレイン酸変性ポリエチレン（MFR = 2.9 g / 10 分、無水マレイン酸グラフト量：0.18%）を使用した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 1 に示す。

実施例 9

20 ウレタン系プライマーとして日本ポリウレタン工業製：コロネート L / ニッポラン 1100（商標）を使用し、前処理として 80℃×5 分で加熱した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 1 に示す。

実施例 10

25 ウレタン系プライマーとしてタケダ薬品（株）製：A-310 / A-3（商標）を使用し、前処理として 80℃×5 分で加熱した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 1 に示す。

実施例 11

イミン系プライマーとして日本触媒化学工業製：P-1000（商標）を使用し、前処理として80℃×10分で加熱した以外は実施例2と同様に試験を実施した。結果を表1に示す。

比較例 1

- 5 アルミニウム板を、トルエン溶液に浸漬して20分間超音波洗浄し、表面処理層を形成することなく、実施例2と同様にプライマー層および接着性樹脂層を積層して試験を実施した。結果を表1に示す。

比較例 2

- 10 アルミニウム板を、トルエン溶液に浸漬して20分間超音波洗浄し、表面処理層を形成することなく、実施例3と同様にプライマー層および接着性樹脂層を積層し、試験を実施した。結果を表1に示す。

比較例 3

- 15 アルミニウム板を、トルエン溶液に浸漬して20分間超音波洗浄し、表面処理層を形成することなく、実施例4と同様にプライマー層および接着性樹脂層を積層し、試験を実施した。結果を表1に示す。

比較例 4

アルミニウム板を、トルエン溶液に浸漬して20分間超音波洗浄し、表面処理層を形成することなく、実施例5と同様にプライマー層および接着性樹脂層を積層し、試験を実施した。結果を表1に示す。

20 比較例 5

- 実施例2と同様にアルミニウム板に表面処理をした上に、エポキシ系プライマー層を形成することなく、直接接着性樹脂フィルムを重ねてプレス接着（予熱180℃×3分、加圧180℃×1分、0.59MPa（6kg/cm²）圧、冷却15℃×3分、0.49MPa（5kg/cm²）圧）を行った以外は実施例2と同様に試験を実施した。結果を表1に示す。
- 25

表 1

5		接着力 (N / 15 mm)	
		浸漬前	浸漬後
10	実施例 1	8.0	4.5
	実施例 2	剥離不可 (母材破壊)	剥離不可
	実施例 3	剥離不可 (母材破壊)	剥離不可
	実施例 4	剥離不可 (母材破壊)	3.3
	実施例 5	剥離不可 (母材破壊)	6.8
	実施例 6	剥離不可 (母材破壊)	剥離不可
	実施例 7	11.2	10.5
15	実施例 8	11	8.8
	実施例 9	10.8	5.6
	実施例 10	9.6	4.5
	実施例 11	5.8	1.2
20	比較例 1	剥離不可 (母材破壊)	0 (剥離)
	比較例 2	剥離不可 (母材破壊)	0 (剥離)
	比較例 3	剥離不可 (母材破壊)	0 (剥離)
	比較例 4	剥離不可 (母材破壊)	0 (剥離)
	比較例 5	剥離不可 (母材破壊)	0 (剥離)

25

産業上の利用可能性

本発明の積層体は、金属層と接着樹脂層との接着力に優れるとともに極性有機溶媒または塩に対する耐久力に優れ、非水電解質等と接触しても層間剥離を生じることがないので、一次電池または二次電池の電極部保護フィルムまたは二次電池電極部保護フィルムとして好適に使用することができ、このため長期間安定して使用することができる一次電池または二次電池を得ることができる。

1 0

1 5

2 0

2 5

請求の範囲

1. 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
- 5 表面処理層上に形成されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、
電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体。
2. 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
- 1 0 表面処理層上に形成されたプライマー層と、
プライマー層上に積層されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、
電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体。
3. 金属層と、
- 1 5 金属層の表面に形成された表面処理層と、
表面処理層上に形成されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、
二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体。
- 2 0 4. 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
表面処理層上に形成されたプライマー層と、
プライマー層上に積層されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層とを含む、
- 2 5 二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体。

5. 金属層がアルミニウム、ニッケル、銅、鉄およびこれらの合金から選ばれる1種以上のものである請求の範囲第1項ないし第4項の積層体。

6. 表面処理層が化成処理層である請求の範囲第1項ないし第5項のいずれかの積層体。

5 7. プライマー層がエポキシ系、ウレタン系、エポキシウレタン系、イミン系、チタネート系、ポリエステル系またはシラン系の熱硬化型プライマーである請求の範囲第1項ないし第6項のいずれかの積層体。

8. 接着性樹脂がポリオレフィン樹脂にエチレン性不飽和カルボン酸がグラフト共重合したグラフト変性ポリオレフィン樹脂である請求の範囲第1項ないし第7項のいずれかの積層体。

9. グラフト変性ポリオレフィン樹脂がグラフト変性ポリエチレン樹脂またはグラフト変性ポリプロピレン樹脂である請求の範囲第8項の積層体。

10. 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

15 電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

11. 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にプライマー層を形成し、プライマー層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

20 電池電解液封止フィルム用積層体または電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

12. 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

25 二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

13. 金属層の表面に表面処理層を形成し、表面処理層上にプライマー層を

形成し、プライマー層上にカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂を積層する

二次電池電解液封止フィルム用積層体または二次電池電極部保護フィルム用積層体の製造方法。

- 5 14. 請求の範囲第1項、第2項および第5項ないし第9項のいずれかの積層体からなる電池電解液封止フィルムまたは電池電極部保護フィルム。

15. 請求の範囲第1項、第2項および第5項ないし第9項のいずれかの積層体からなる電池電解液封止フィルムまたは電池電極部保護フィルムを含んでなる電池。

- 10 16. 請求の範囲第3項ないし第9項のいずれかの積層体からなる二次電池電解液封止フィルムまたは二次電池電極部保護フィルム。

17. 請求の範囲第3項ないし第9項のいずれかの積層体からなる二次電池電解液封止フィルムまたは二次電池電極部保護フィルムを含んでなる二次電池。

- 15 18. 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
表面処理層上に形成されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層と
を含む積層体からなるフレキシブルパッケージ。

- 20 19. 金属層と、
金属層の表面に形成された表面処理層と、
表面処理層上に形成されたプライマー層と、
プライマー層上に積層されたカルボン酸基またはその誘導体で変性されたポリオレフィンからなる接着性樹脂層と
を含む積層体からなるフレキシブルパッケージ。

- 25 20. 金属層がアルミニウム、ニッケル、銅、鉄およびこれらの合金から選ばれる1種以上のものである請求の範囲第18項または第19項のフレキシブル

パッケージ。

21. 表面処理層が化成処理層である請求の範囲第18項ないし第20項のいずれかのフレキシブルパッケージ。

22. プライマー層がエポキシ系、ウレタン系、エポキシウレタン系、イミン系、チタネート系、ポリエステル系またはシラン系の熱硬化型プライマーである請求の範囲第18項ないし第21項のいずれかのフレキシブルパッケージ。

23. 接着性樹脂がポリオレフィン樹脂にエチレン性不飽和カルボン酸がグラフト共重合したグラフト変性ポリオレフィン樹脂である請求の範囲第18項ないし第22項のいずれかのフレキシブルパッケージ。

10 24. グラフト変性ポリオレフィン樹脂がグラフト変性ポリエチレン樹脂またはグラフト変性ポリプロピレン樹脂である請求の範囲第23項のフレキシブルパッケージ。

15

20

25

THIS PAGE BLANK (USPTO)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05737

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ H01M2/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl.⁷ H01M2/02, C23C22/00-30/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2000 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP, 11-86808, A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 30 March, 1999 (30.03.99) (Family: none)	1-24
A	JP, 11-67166, A (Showa Aluminum Corporation), 09 March, 1999 (09.03.99) (Family: none)	1-24
A	JP, 9-283101, A (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 31 October, 1997 (31.10.97) (Family: none)	1-24

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
13 November, 2000 (13.11.00)

Date of mailing of the international search report
21 November, 2000 (21.11.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M2/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ H01M2/02, C23C22/00-30/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2000年

日本国実用新案登録公報 1996-2000年

日本国登録実用新案公報 1994-2000年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP, 11-86808, A(住友電気工業株式会社), 30. 3月. 1999(30. 03. 99) (ファミリーなし)	1-24
A	JP, 11-67166, A(昭和アルミニウム株式会社), 9. 3月. 1999(09. 03. 99) (ファミリーなし)	1-24
A	JP, 9-283101, A(住友電気工業株式会社), 31. 10. 1997(31. 10. 97) (ファミリーなし)	1-24

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

13. 11. 00

国際調査報告の発送日

21.11.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

高木 正博

4 X

9 5 4 1

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

THIS PAGE BLANK (USPTO)